

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

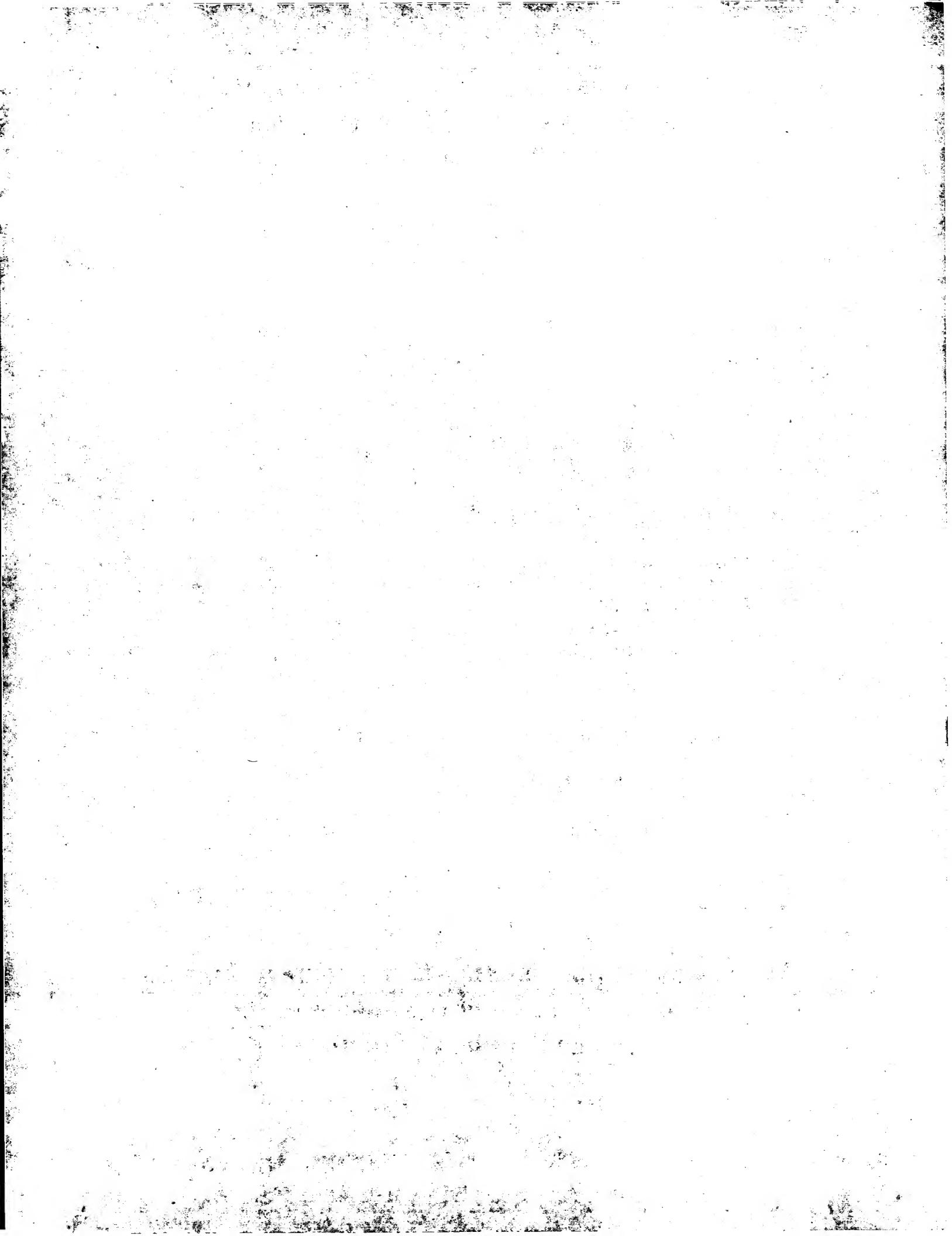
Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

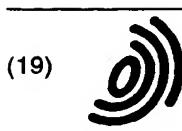
Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**





(19)

Europäisches Patentamt  
European Patent Office  
Office européen des brevets



(11)

EP 1 359 196 A1

(12)

## EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(43) Veröffentlichungstag:  
05.11.2003 Patentblatt 2003/45

(51) Int Cl.7: C08L 77/00, C08K 3/34,  
C08K 7/10, C08K 7/00

(21) Anmeldenummer: 03008625.0

(22) Anmeldetag: 15.04.2003

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
AT BE BG CH CY CZ DE DK EE ES FI FR GB GR  
HU IE IT LI LU MC NL PT RO SE SI SK TR  
Benannte Erstreckungsstaaten:  
AL LT LV MK

(30) Priorität: 03.05.2002 DE 10219817

(71) Anmelder: REHAU AG + Co  
95111 Rehau (DE)

(72) Erfinder: Steffl, Udo  
95111 Rehau (DE)

### (54) Schichtsilikatverstärkte Polyamid-Zusammensetzung

(57) Die Erfindung betrifft eine silikatverstärkte, thermoplastische Zusammensetzung auf der Basis von Polyamid. Bei der Herstellung des Gemisches werden in einem Zwei-Schnecken-Kneter zunächst die exfolierten, organophil modifizierten Schichtsilikate mit einem Teil der Aminoendgruppen des Polyamids in der Schmelze umgesetzt, dann ein Poly(styrol-co-maleimid)-Copolymeres und ein modifizierter Kautschuk als

Schlagzähmodifizier zugegeben.

Derartige silikatverstärkte, thermoplastische Zusammensetzungen weisen eine hohe Wärmeformbeständigkeit in Verbindung mit hoher Steifigkeit und hoher Schlagzähigkeit auf.

Sie sind vorzugsweise geeignet zur Herstellung von Formteilen oder Halbzeugen für die Elektroindustrie.

EP 1 359 196 A1

**Beschreibung**

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft eine silikatverstärkte, hochtemperaturbeständige thermoplastische Zusammensetzung auf der Basis von Polyamid.

5 [0002] Durch Ionenaustausch mit organischen Ionen organophil modifizierte, anorganische Schichtverbindungen, insbesondere Zwei- und Drei-Schicht-Silikate, wie z. B. der Smektit-Tonerden, sind bereits seit mehreren Jahrzehnten dem Fachmann bekannt.

10 [0003] So wurde das Grundprinzip der organophilen Modifizierung von Natriummontmorilloniten und Natrium-Hektoriten durch Ionenaustausch mit Alkylammoniumionen, die bevorzugt mindestens einen Alkylsubstituenten mit mehr als 6 Methylgruppen enthalten, bereits von U. Hoffmann (Angewandte Chemie 1956, 68, Seite 53 ff.) und A. Weiß (Angewandte Chemie 1963, 75, Seite 113 ff.) vorgestellt. Durch den Ionenaustausch wird eine Aufweitung des Schichtabstandes erzielt, die sich durch Röntgenbeugung und Transmissionselektronenmikroskopie nachweisen lässt.

15 [0004] Wie im Review von M. Alexandre (Materials Science and Eng. 2000, 28:1ff.) beschrieben, sind thermoplastische Nanocomposite mit Polyamid, Polypropylen oder Poly(ethen-co-vinylacetat) als Matrix bekannt.

20 [0005] Es ist inzwischen Stand der Technik, dass Polymere durch die Einarbeitung von organophil modifizierten, anorganischen Schichtverbindungen hinsichtlich Steifigkeit und/oder Dimensionsstabilität verbessert werden können. Nanocomposite auf Polyamidbasis weisen im Allgemeinen auch eine Erhöhung der Sperrwirkung gegen Gas oder Flüssigkeitspermeation auf. Teilweise kann es auch zu einer Reduzierung der Brennbarkeit kommen.

25 [0006] Beispielsweise beschreibt die DE 19854170 eine Zusammensetzung, die im Wesentlichen aus

- a) einem thermoplastischen Kunststoff
- b) einem Schichtsilikat
- c) einem Kautschuk mit definierter Teilchengrößenverteilung

30 26 besteht. Das Verbundmaterial besitzt ein, bezüglich Steifigkeit zu Schlagzähigkeit ausgeglichenes Eigenschaftsprofil. Eine Erhöhung der Wärmeformbeständigkeit wird jedoch nicht offenbart.

35 [0007] In der US 5206284 wird Polypropylen zur Erhöhung der Wärmeformbeständigkeit und Schlagzähigkeit mit Polyamid-Nanocompositen gemischt. Dabei wird Polyamid mit eingelagerten, exfoliierten Schichtsilikaten in der Polypropylenmatrix dispergiert. Durch Zusatz eines gepropften, unpolaren Polymers wird die Anbindung der Polyamidphase an die Polypropylenmatrix erreicht.

40 Die Wärmeformbeständigkeit wird hier jedoch nicht signifikant über das Polypropyleniveau angehoben: Die HDT nach ASTM D 648 liegt hier zwischen 111° und 129° C.

45 [0008] Wie dem Fachmann bekannt ist, können zur Erhöhung der Wärmeformbeständigkeit von Polyamid 6 diesem Poly(styrol-co-maleinsäureimid)-Copolymeren zugesetzt werden. Ein Einsatz von bisterminierten Polyamiden, wie Polyamid 66, Polyamid 46 oder Polyamid MXD6 ist jedoch auf Grund der unvermeidlichen Vernetzungsreaktion zwischen den Aminoendgruppen des Polyamids und den Maleinsäureanhydridgruppen des Poly(styrol-co-maleinsäureimid)-Copolymeren nicht möglich. Zusammensetzungen auf dieser Basis weisen ein schlechtes Eigenschaftsprofil auf: Eine Bestimmung der Fließfähigkeit, gemessen über den Schmelzindex nach DIN ISO 1133 bei 280°/5 kg ist teilweise nicht mehr möglich. Im gleichen Maße wie der Schmelzindex sinkt auch die Schlagzähigkeit mit zunehmender Vernetzung ab. Wie im Vergleichsbeispiel 2 zu erkennen ist, bleibt auch die Wärmeformbeständigkeit dieser Zusammensetzung für viele Anwendungen auf zu niedrigem Niveau: Der VICAT-B50-Wert nach DIN ISO 306 beträgt 134° C bzw die HDT nach DIN EN ISO 75 138° C.

50 [0009] Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, eine hochtemperaturbeständige, thermoplastische Zusammensetzung zur Verfügung zu stellen, die über eine hohe Fließfähigkeit und Oberflächenqualität ohne Vernetzungserscheinungen beim Compoundierschritt verfügt, eine gute Schlagzähigkeit mit hoher Steifigkeit vereint und kostengünstig herstellbar ist.

[0010] Erfindungsgemäß gelingt die Lösung der Aufgabe überraschenderweise durch Zusatz von exfoliierten Schichtsilikaten, wobei ein Teil der Aminoendgruppen des Polyamids zunächst mit dem organophil modifizierten, anorganischen Schichtsilikat umgesetzt wird. Die Aminogruppen stehen somit nicht mehr für eine Reaktion mit den Maleinsäureanhydridgruppen des Poly(styrol-co-maleinsäureimid)-Copolymeren zur Verfügung. Somit wird eine Vernetzung im Compoundierextruder verhindert.

[0011] Für die erfindungsgemäße Zusammensetzung kommen folgende Komponenten zum Einsatz:

- (A) ein thermoplastisches Polyamid
- (B) ein Poly(styrol-co-maleinsäureimid)-Copolymeres
- (C) einen Schlagzäh-Modifier
- (D) ein mit organischen Ionen modifizierten Schichtsilikat

[0012] Ohne den Zusatz der Komponente (D) in den erfindungsgemäßen, hochtemperaturbeständigen, thermoplastischen Zusammensetzungen und die darauf angepasste Verfahrenstechnik wäre die Herstellung von Blends aus bisterminierten Polyamiden und Poly(styrol-co-maleinsäureimid)-Copolymeren mit guter Fließfähigkeit und Oberflächenqualität nicht möglich.

[0013] Überraschenderweise führt darüber hinaus die gezielte Auswahl der Komponente (B) und (C) in Funktionalität und Molekulargewicht zu einem überlegenen Eigenschaftsbild, wie es in der Aufgabenstellung und den Beispielen formuliert ist.

[0014] Bevorzugte Komponenten (A) umfassen Polyamid 6, Polyamid 66, Polyamid 46, Polyamid MXD 6 oder eine Mischung dieser Polyamide, wobei Komponente (A) zu 100 Gewichtsanteilen enthalten ist.

[0015] Das Poly(styrol-co-maleinsäureimid)-Copolymere der Komponente (B) mit einem Rest unreaktierter Maleinsäureanhydridgruppen weist ein mittleres Molekulargewicht zwischen 80.000 und 200.000 auf.

[0016] Der Gehalt an unreaktierten Maleinsäureanhydridgruppen bei dem Poly(styrol-comaleinsäureimid)-Copolymeren beträgt zwischen 0,1 bis 10 mol% und der Gehalt an Maleimidgruppen zwischen 0,1 bis 50 mol%, die Glasübergangstemperatur liegt dabei zwischen 150 und 195° C.

[0017] Der Gewichtsanteil der Komponente (B), bezogen auf Komponente (A), kann zwischen 0,1 und 50 Teilen betragen.

[0018] Die Schlagzähmodifizier der Komponente (C) umfassen Naturkautschuk, Polybutadien, Polyisopren, Polyisobutylen, Mischpolymerisate des Butadiens und/oder Isoprens mit Styrol und anderen Comonomeren, hydrierte Produkte und/oder solche, die durch Ppropfen mit Maleinsäureanhydrid, Itaconsäureanhydrid, (Meth)acrylsäure und deren Ester entstanden sind. Möglich sind auch Ppropfkautschuke mit einem vernetzen elastomeren Kern, der aus Butadien, Isopren oder Alkylacrylaten besteht und eine Ppropfhülle aus Polystyrol hat. Weiterhin kommen in Frage unpolare oder polare Olefinhomo- und Copolymeren wie Ethylen-Propylen-, Ethylen-Propylen-Dien- und Ethylen-Octen- oder Ethylen-Vinylacetat-Kautschuke oder unpolare oder polare Olefinhomo- und Copolymeren, die durch Ppropfen mit Maleinsäureanhydrid, Itaconsäureanhydrid, (Meth)acrylsäure und deren Ester entstanden sind.

[0019] Besonders bevorzugte Komponenten (C) sind durch Ppropfen mit Maleinsäureanhydrid funktionalisierte Mischpolymeren des Butadiens mit Styrol und unpolare oder polare Olefinhomo- und Copolymeren, die durch Ppropfen mit Maleinsäureanhydrid entstanden sind.

[0020] Der Gewichtsanteil der Komponente (C), bezogen auf die Komponente (A), kann zwischen 0,01 und 50 Teilen betragen.

[0021] Bevorzugte Komponenten (D) sind Zwei- und Dreischichtsilikate der Phyllosilikate, ausgewählt aus Montmorillonit und/oder Hektorit und/oder Saponit und/oder Vermiculit, und/oder Smektit, und/oder Illit, und/oder Sepiolit und/oder Palygorskit, und/oder Muscovit, und/oder Allevardit, und/oder Amesit und/oder Fluorhectorit, und/oder Beidellit und/oder Talkum, und/oder Nontronit, und/oder Stevensit, und/oder Bentonit, und/oder Glimmer, und/oder Fluorvermiculit, und/oder Halloysit und/oder Fluor enthaltende synthetische Talkumtypen, die entsprechend der ionischen Schichtladung durch Ionenaustausch mit organischen Kationen modifiziert sind.

[0022] Organische Kationen gemäß vorstehender Beschreibung sind protonierte primäre, sekundäre oder tertiäre Amine, protonierte basische Heteroatomverbindungen wie z. B. Imidazole mit variablen Substituenten, Amidine, Harnstoffe oder Iminoether, oder eine quarternäre Ammoniumverbindung, die als Substituenten über mindestens eine Alkyl- oder funktionalisierte Alkylgruppe mit mehr als sechs Methylgruppen verfügt. Besonders bevorzugt ist die Organophilierung mit Stearylamin, Aminododecansäure oder mit 2-hydroxyalkyl-substituierten Imidazolen. Organische Kationen gemäß vorstehender Beschreibung können weiterhin auch Metallsalze von aromatischen, aliphatischen, araliphatischen und cycloaliphatischen Carbonsäuren, Sulfonsäuren oder Phosphorsäuren sein, die bevorzugt mindestens eine Alkylgruppe mit mehr als 6 C-Atomen enthalten.

[0023] Bevorzugte Komponenten (D) sind auch Hydrotalcite, die entsprechend der ionischen Schichtladung durch Ionenaustausch mit Carboxylatkomponenten modifiziert sind. Carboxylatkomponenten gemäß vorstehender Beschreibung sind primäre Carboxylate, die als Substituenten über eine Alkyl- oder funktionalisierte Alkylgruppe mit mehr als sechs Methylgruppen verfügen. Der Gewichtsanteil der Komponente (D), bezogen auf die Komponente (A), kann zwischen 1 und 50 Teilen, besonders bevorzugt zwischen 0,1 - 30 Teilen, betragen.

[0024] Die erfindungsgemäße, silikatverstärkte, hochtemperaturbeständige, thermoplastische Zusammensetzung kann bis zu 200 Gewichtsanteile Zusätze, bezogen auf die Komponente (A) enthalten: Bis zu 5 Gewichtsanteile Gleit- oder Verarbeitungshilfsmittel, bis zu 5 Gewichtsanteile Pigmente, bis zu 2 Gewichtsanteile Nukleierungsmittel, bis zu 1 Gewichtsanteil Stabilisatoren, bis zu 2 Gewichtsanteile Treibmittel, bis zu 2 Gewichtsanteile Antistatika, bis zu 100 Gewichtsanteile Prozessöle, bis zu 100 Gewichtsanteile weitere Füllstoffe und/oder Flammenschutzmittel und bis zu 100 Gewichtsanteile Glasfasern.

[0025] Die erfindungsgemäßen, silikatverstärkten, hochtemperaturbeständigen, thermoplastischen Zusammensetzungen werden in bekannter Weise durch Mischen und Erwärmen der einzelnen Komponenten, vorzugsweise unter Einwirkung von Scherkräften, in einem Aufbereitungsaggregat hergestellt. Sie lassen sich mittels Extrusions- oder

Spritzgussverfahren zur Herstellung von Formteilen oder Halbzeugen verarbeiten.

[0026] In den folgenden Ausführungsbeispielen wird die vorliegende Erfindung verdeutlicht. Die Zusammensetzungen sind in Gewichtsanteilen (T), bezogen auf 100 Gewichtsanteile der Komponente (A) angegeben, und betragen in den folgenden Beispielen:

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

Beispiel 1:	Beispiel 2:	Beispiel 3:
100 T Nanoverstärktes Polyamid 6 (Komponente A) [1]	100 T Nanoverstärktes Polyamid 66 (Komponente A) [2]	100 T Nanoverstärktes Polyamid 66 (Komponente A) [2]
45,4 T Poly(styrol-co-maleinsäureimid)-copolymeres (Komponente B) [3]	45,4 T Poly(styrol-co-maleinsäureimid)-copolymeres 1 (Komponente B) [3]	45,4 T Poly(styrol-co-maleinsäureimid)-copolymeres 2 (Komponente B) [4]
36,4 T Schlagzähmodifizierer (Komponente (C)) [5]	36,4 T Schlagzähmodifizierer (Komponente (C)) [5]	36,4 T Schlagzähmodifizierer (Komponente (C)) [5]

Vergleichsbeispiel 1:	Vergleichsbeispiel 2:
100 T Polyamid 6 [6] 45,4 T Poly(styrol-co-maleinsäureimid)copolymeres [3] 36,4 T Schlagzähmodifizierer [5]	100 T Polyamid 66 [7] 45,4 T Poly(styrol-co-maleinsäureimid)copolymeres [3] 36,4 T Schlagzähmodifizierer [5]

[1] 5%-Nanoverstärktes Polyamid 6 im Beispiel 1 oder 3: E-Modul 4523 MPa; Reißdehnung 5,5 %; Zugfestigkeit 75,2 MPa; Röntgendiffraktometrie (CuK $\alpha$ -Linie) kein Schichtabstandsreflex  
 [2] Nanoverstärktes Polyamid 66 im Beispiel 2: E-Modul 3635 MPa; Reißdehnung 6,0 %; Zugfestigkeit 82,8 MPa; Röntgendiffraktometrie (CuK $\alpha$ -Linie) kein Schichtabstandsreflex  
 [3] Polystyrolcopolymeres 1: Poly(styrol-co-maleinsäureimid), Mw = 150.000, Gehalt an Maleinimidgruppen 39 mol%, Glasübergangstemperatur 195 °C  
 [4] Polystyrolcopolymeres 2: Poly(styrol-co-maleinsäureimid), Mw = 140.000, Gehalt an Maleinimidgruppen 39 mol%, Glasübergangstemperatur 195 °C  
 [5] Schlagzähmodifizierer: Maleinsäureanhydrid-funktionalisiertes Styrol-Ethylen/Butadien-Styrol-Triblockcopolymer, MFR [g/10min] 22 bei 230°C/5kg; Styrol/EB-Verhältnis 30/70  
 [6] Polyamid im Vergleichsbeispiel 1: Polyamid 6, Schmelzpunkt 220°C, spezifische Dichte 1,10 g/cm<sup>3</sup>  
 [7] Polyamid im Vergleichsbeispiel 2: Polyamid 66, Schmelzpunkt 260°C, spezifische Dichte 1,12 g/cm<sup>3</sup>

#### Herstellung des nanoverstärkten Polyamid 6:

[0027] In einem Doppelschneckenextruder mit Dosiereinrichtung für Granulate wird bei Temperaturen größer 240°C granulatförmiges Polyamid 6 dosiert. Über die Pulverwaage wird der Nanofüllstoff (organischer Modifizierer: C<sub>18</sub> n-Alkylgruppe; Kohlenstoffgehalt ca 38%, spezifische Dichte 1,8g/cm<sup>3</sup>; Feuchtigkeit 3,0%; Reinheit 98,5%, mittlerer Partikeldurchmesser 36 $\mu$ m, Schichtabstand 3,4nm) zudosiert und die Mischung aufgeschmolzen, strangförmig extrudiert und geschnitten. Das resultierende Thermoplastgemisch hat die unter [1] angegebenen Eigenschaften. Eine röntgenografische Untersuchung des nanoverstärkten Polyamid 6 zeigt aufgrund der Exfolierung der Schichtsilikate keinen Schichtabstandsreflex.

#### Herstellung des nanoverstärkten Polyamid 66:

[0028] In einem Doppelschneckenextruder mit Dosiereinrichtung für Granulate wird bei Temperaturen größer 260°C granulatförmiges Polyamid 66 dosiert. Über die Pulverwaage wird der Nanofüllstoff (organischer Modifizierer: C<sub>18</sub> n-Alkylgruppe; Kohlenstoffgehalt ca 38%, spezifische Dichte 1,8g/cm<sup>3</sup>; Feuchtigkeit 3,0%; Reinheit 98,5%, mittlerer Partikeldurchmesser 36 $\mu$ m, Schichtabstand 3,4nm) zudosiert und die Mischung aufgeschmolzen, strangförmig extrudiert und geschnitten. Das resultierende Thermoplastgemisch hat die unter [2] angegebenen Eigenschaften. Eine röntgenografische Untersuchung des nanoverstärkten Polyamid 66 zeigt aufgrund der Exfolierung der Schichtsilikate keinen Schichtabstandsreflex.

Beispiel 1:

5 [0029] In einem Doppelschneckenextruder mit Dosiereinrichtung für Granulate werden bei Temperaturen größer 240°C granulatförmiges nanoverstärktes Polyamid 6 (Komponente A+D), Polystyrolcopolymeres (Komponente B) und Schlagzähmodifizier (Komponente C) dosiert, die Mischung wird aufgeschmolzen, strangförmig extrudiert und geschnitten. Das resultierende Thermoplastgemisch hat die in der Tabelle angegebenen Eigenschaften.

Beispiel 2:

10 [0030] In einem Doppelschneckenextruder mit Dosiereinrichtung für Granulate werden bei Temperaturen größer 260°C granulatförmiges nanoverstärktes Polyamid 66 (Komponente A+D), Polystyrolcopolymeres (Komponente B) und Schlagzähmodifizier (Komponente C) dosiert, die Mischung wird aufgeschmolzen, strangförmig extrudiert und geschnitten. Das resultierende Thermoplastgemisch hat die in der Tabelle angegebenen Eigenschaften.

15 Beispiel 3:

20 [0031] In einem Doppelschneckenextruder mit Dosiereinrichtung für Granulate werden bei Temperaturen größer 260°C granulatförmiges nanoverstärktes Polyamid 66 (Komponente A+D), Polystyrolcopolymeres (Komponente B) und Schlagzähmodifizier (Komponente C) dosiert, die Mischung wird aufgeschmolzen, strangförmig extrudiert und geschnitten. Das resultierende Thermoplastgemisch hat die in der Tabelle angegebenen Eigenschaften.

Vergleichsbeispiel 1:

25 [0032] In einem Doppelschneckenextruder mit Dosiereinrichtung für Granulate werden bei Temperaturen größer 240°C granulatförmiges Polyamid 6 [6], Polystyrolcopolymeres und Schlagzähmodifizier dosiert, die Mischung wird aufgeschmolzen, strangförmig extrudiert und geschnitten. Das resultierende Thermoplastgemisch hat die in der Tabelle angegebenen Eigenschaften.

Vergleichsbeispiel 2:

30 [0033] In einem Doppelschneckenextruder mit Dosiereinrichtung für Granulate werden bei Temperaturen größer 260°C granulatförmiges Polyamid 66 [7], Polystyrolcopolymeres und Schlagzähmodifizier dosiert, die Mischung wird aufgeschmolzen, strangförmig extrudiert und geschnitten. Das resultierende Thermoplastgemisch hat die in der Tabelle angegebenen Eigenschaften.

35 [0034] Mechanische Eigenschaften der erfindungsgemäßen Zusammensetzungen im Vergleich zum Stand der Technik

40

45

50

55

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

Eigenschaft	Einheit	Norm	Beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3	Vergleichsbeispiel 1	Vergleichsbeispiel 2
E-Modul	[MPa]	ISO 527	2330	2418	2458	2036	2100
Schlagzähligkeit	[kJ/m <sup>2</sup> ]	ISO 179	0Br	65,3	57,4	Br	19,7
Vicat B50	[°C]	DIN ISO 306	154	160	158	138	134
Reißdehnung	[%]	DIN 53504	36,5	8,1	9,3	38,8	3,1
MFR [280°C/5kg]	[g/10min]	DIN ISO 1133	15,2	16,3	17,4	24,7	Nicht mehr meßbar

ohne Bruch

## Patentansprüche

## 1. Silikatverstärkte, hochtemperaturbeständige, thermoplastische Zusammensetzung, umfassend

5 (A) ein thermoplastisches Polyamid  
 (B) ein Poly(styrol-co-maleinsäureimid)-Copolymeres  
 (C) einen Schlagzähmodifizierer  
 (D) ein Schichtsilikat

10 wobei ein Teil der Aminoendgruppen des Polyamids der Komponente (A) in einem ersten Schritt mit dem modifizierten Schichtsilikat der Komponenten (D) umgesetzt wird, bevor in einem zweiten Schritt dann die Komponenten (B) und (C) zugesetzt werden.

## 2. Zusammensetzung gemäß Anspruch 1, wobei die Komponente (A) ausgewählt ist aus der Gruppe Polyamid 66, Polyamid 46, Polyamid MXD6 oder aus einer Mischung dieser Polyamide.

## 3. Zusammensetzung gemäß Anspruch 1, wobei die Komponente (B) ein Poly(styrol-co-maleinsäureimid)-Copolymeres mit einem Rest unreaktierter Maleinsäureanhydridgruppen ist und ein gewichtsmittleres Molekulargewicht zwischen 80.000 und 200.000 aufweist. Der Gehalt an unreaktierten Maleinsäureanhydridgruppen beim Poly(styrol-co-maleinsäureimid)-Copolymeren beträgt zwischen 0,1 und 10 mol% und der Gehalt an Maleimidgruppen zwischen 0,1 und 50 mol%, die Glasübergangstemperatur liegt zwischen 150 und 195° C.

## 4. Zusammensetzung gemäß Anspruch 1, wobei die Komponente (C) ausgewählt ist aus der Gruppe Mischpolymersäure des Butadiens und/oder Isoprens mit Styrol und anderen Comonomeren, hydrierte Produkte und/oder solche, die durch Ppropfen mit Maleinsäureanhydrid, Itaconsäureanhydrid, (Meth)acrylsäure und deren Ester entstanden sind, oder unpolare oder polare Oleinhomo- und Copolymeren, die durch Ppropfen mit Maleinsäureanhydrid, Itaconsäureanhydrid, (Meth)acrylsäure oder deren Ester entstanden sind.

## 5. Zusammensetzung gemäß Anspruch 1, wobei Komponente (D) aus einem oder mehreren 2- und 3-Schichtsilikaten bestehen, die entsprechend ihrer ionischen Schichtladung durch Ionenaustausch mit Ammoniumkomponente oder Carboxylatkomponente organophil modifiziert sind.

## 6. Zusammensetzung nach den Ansprüchen 1 und 5, wobei die organischen Schichtsilikate Phyllosilikate sind, ausgewählt aus Montmorillonit und/oder Hektorit und/oder Bentonit und/oder Glimmer und/oder Fluor enthaltende synthetische Talkumtypen oder ein anionenaustauschfähiges Hydrotalcit.

## 7. Zusammensetzung gemäß Anspruch 5, wobei die Ammoniumkomponente ein protoniertes primäres, sekundäres oder tertiäres Amin, eine protonierte basische Heteroatomverbindung oder eine quarternäre Ammoniumverbindung ist, die als Substituenten über mindestens eine Alkyl- oder funktionalisierte Alkylgruppe mit mehr als sechs Methylgruppen verfügt.

## 8. Zusammensetzung gemäß Anspruch 5, wobei die Carboxylatkomponente ein primäres, Carboxylat ist, das als Substituent über eine Alkyl- oder funktionalisierte Alkylgruppe mit mehr als sechs Methylgruppen verfügt.

## 45 9. Zusammensetzung gemäß einer der Ansprüche 1 - 8, zusätzlich umfassend die Zugabe von bis zu 200 Gewichtsanteilen, bezogen auf die Komponenten (A), in Form von bis zu 5 Gewichtsanteilen Gleit- oder Verarbeitungshilfsmittel, bis zu 5 Gewichtsanteilen Pigmente, bis zu 2 Gewichtsanteilen Nukleierungsmittel, bis zu 1 Gewichtsanteil Stabilisatoren, bis zu 2 Gewichtsanteilen Treibmittel, bis zu 2 Gewichtsanteilen Antistatika, bis zu 100 Gewichtsanteilen Prozessöle, bis zu 100 Gewichtsanteilen Füllstoffe und/oder Flammenschutzmittel, bis zu 100 Gewichtsteilen Glasfasern.

## 50 10. Verwendung der silikatverstärkten thermoplastischen Zusammensetzung gemäß einer der Ansprüche 1 bis 9 bevorzugt zur Herstellung von Formteilen oder Halbzeugen.

## 55 11. Verfahren zur Herstellung einer silikatverstärkten thermoplastischen Zusammensetzung gemäß einer der vorhergehenden Ansprüche, wobei in einem ersten Compoundierschritt ein Teil der Aminoendgruppen des Polyamids der Komponente (A) mit dem modifizierten Schichtsilikat der Komponente (D) umgesetzt wird, bevor in einem zweiten Schritt dann Komponenten (B) und (C) zugesetzt werden.



Europäisches  
Patentamt

## EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung  
EP 03 00 8625

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE															
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrieb Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int.CI.7)												
A	US 4 739 007 A (SUGIYAMA SHIGETOSHI ET AL) 19. April 1988 (1988-04-19) * das ganze Dokument *		C08L77/00 C08K3/34 C08K7/10 C08K7/00												
A	EP 1 076 077 A (EMS CHEMIE AG) 14. Februar 2001 (2001-02-14) * Seite 2, Zeile 1 - Seite 3, Zeile 8 *														
A	US 5 650 466 A (GOTTSCHALK AXEL ET AL) 22. Juli 1997 (1997-07-22) * Spalte 10, Absatz 4; Ansprüche *														
RECHERCHIERTE SACHGEBiete (Int.CI.7)															
C08L C08K															
<p>Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt</p> <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width: 33%;">Recherchenort</td> <td style="width: 33%;">Abschlußdatum der Recherche</td> <td style="width: 33%;">Prüfer</td> </tr> <tr> <td>DEN HAAG</td> <td>27. August 2003</td> <td>Leroy, A</td> </tr> <tr> <td colspan="3"> <b>KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE</b> <p>X: von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y: von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A: technologischer Hintergrund O: nichtschriftliche Offenbarung P: Zwischenliteratur</p> </td> </tr> <tr> <td colspan="3"> <p>T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus anderen Gründen angeführtes Dokument</p> <p>&amp; : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument</p> </td> </tr> </table>				Recherchenort	Abschlußdatum der Recherche	Prüfer	DEN HAAG	27. August 2003	Leroy, A	<b>KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE</b> <p>X: von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y: von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A: technologischer Hintergrund O: nichtschriftliche Offenbarung P: Zwischenliteratur</p>			<p>T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus anderen Gründen angeführtes Dokument</p> <p>&amp; : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument</p>		
Recherchenort	Abschlußdatum der Recherche	Prüfer													
DEN HAAG	27. August 2003	Leroy, A													
<b>KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE</b> <p>X: von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y: von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A: technologischer Hintergrund O: nichtschriftliche Offenbarung P: Zwischenliteratur</p>															
<p>T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus anderen Gründen angeführtes Dokument</p> <p>&amp; : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument</p>															

**ANHANG ZUM EUROPÄISCHEN RECHERCHENBERICHT  
ÜBER DIE EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG NR.**

EP 03 00 8625

In diesem Anhang sind die Mitglieder der Patentfamilien der im obengenannten europäischen Recherchenbericht angeführten Patentdokumente angegeben.

Die Angaben über die Familienmitglieder entsprechen dem Stand der Datei des Europäischen Patentamts am  
Diese Angaben dienen nur zur Orientierung und erfolgen ohne Gewähr.

27-08-2003

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
US 4739007	A	19-04-1988	JP	62252425 A	04-11-1987	
			JP	8022946 B	06-03-1996	
			JP	62074957 A	06-04-1987	
			DE	3632865 A1	02-04-1987	
			US	RE37385 E1	18-09-2001	
EP 1076077	A	14-02-2001	JP	2001049116 A	20-02-2001	
			EP	1076077 A1	14-02-2001	
			US	6323272 B1	27-11-2001	
US 5650466	A	22-07-1997	DE	19501450 A1	25-07-1996	
			DE	59600326 D1	20-08-1998	
			EP	0722988 A1	24-07-1996	

EPO FORM P-061

Für nähere Einzelheiten zu diesem Anhang : siehe Amtsblatt des Europäischen Patentamts, Nr.12/82

